

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 11043857 A

(43) Date of publication of application: 16.02.89

(51) Int. Cl.

D04H 5/02
D01F 8/14

(21) Application number: 09195966

(22) Date of filing: 22.07.87

(71) Applicant: OJI PAPER CO LTD

(72) Inventor: KIN KASUMI
KAWANO AKITAKA

(54) BIODEGRADABLE NON-WOVEN FABRIC

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a bulky composite sheet excellent in water-absorbability, heat resistance, flexibility, and mechanical strength and capable of being easily degraded by microorganisms.

SOLUTION: This non-woven fabric comprises a composite sheet produced by intertwisting pulp fibers and filaments in such a way as to laminate a paper sheet made of the pulp fibers on one side of a filament non-woven fabric formed by laminating alternately the filaments each produced by subjecting thermoplastic

resin to melt spinning, wherein the filament non-woven fabric is formed of core-sheath complex filaments whose sheath components are composed of polylactic acid polymer comprising ≤ 80 mol.% of L-lactic acid unit or D-lactic acid unit and the sheath component is composed of such a polymer as to be produced by increasing the molecular weight of polybutylene succinate polymer synthesized from 1,4-butanediol and succinic acid through urethane linkage. This non-woven fabric is usable broadly as a medical or sanitary material, general industrial material, and agricultural material.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-43857

(43)公開日 平成11年(1999)2月16日

(51)Int.Cl.
D 0 4 H 5/02
D 0 1 F 8/14

識別記号

F I
D 0 4 H 5/02
D 0 1 F 8/14

A
B

審査請求 未請求 請求項の数1 OL (全8頁)

(21)出願番号 特願平9-195966

(22)出願日 平成9年(1997)7月22日

(71)出願人 000122298
王子製紙株式会社
東京都中央区銀座4丁目7番5号
(72)発明者 金 琢
東京都江東区東雲1丁目10番6号 王子製紙株式会社東雲研究センター内
(72)発明者 川野 晃敷
東京都江東区東雲1丁目10番6号 王子製紙株式会社東雲研究センター内

(54)【発明の名称】 生分解性不織布

(57)【要約】

【課題】 嵩高で、吸水性と耐熱性と柔軟性と強度が優れ、微生物による容易の分解性を有する複合シートを提供する。

【解決手段】 熱可塑性を有する樹脂を溶融纺糸した長纖維が積層されてなる長纖維不織布の片面に、パルプ纖維よりなる紙シートを積層した後、該紙シート側から該長纖維不織布側に向けて高圧水柱流を施すことにより、該パルプ纖維と該長纖維を絡合させた複合シートからなる不織布において、該長纖維不織布が芯鞘複合長纖維により構成されて、該芯鞘複合長纖維の鞘成分が、L-乳酸単位またはD-乳酸単位を80モル%以上を含有するポリ乳酸重合体からなり、芯成分が1,4-ブタンジオールとコハク酸から合成されるポリブチレンサクシネット重合体をウレタン結合により高分子量化した重合体からなることを特徴とする生分解性不織布である。生分解性を有する複合不織布に関するものであり、吸水性、耐熱性、柔軟性と強度に優れ、医療・衛生資材、一般工業資材、農業資材などの広い分野で使用可能である。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱可塑性を有する樹脂を溶融紡糸した長纖維が積層されてなる長纖維不織布の片面に、パルプ纖維よりなる紙シートを積層した後、該紙シート側から該長纖維不織布側に向けて高圧水柱流を施すことにより、該パルプ纖維と該長纖維を絡合させた複合シートからなる不織布において、該長纖維不織布が芯鞘複合長纖維により構成されて、該芯鞘複合長纖維の鞘成分が、L-乳酸単位またはD-乳酸単位を80モル%以上含有するポリ乳酸重合体からなり、芯成分が1,4-ブタンジオールとコハク酸から合成されるポリブチレンサクシネート重合体をウレタン結合により高分子量化した重合体からなることを特徴とする生分解性不織布。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、柔軟で、高吸水性及び高耐熱性を有し、かつ堆肥中、湿った土中、あるいは活性汚泥を含む水中、海水中等において微生物により完全に分解可能で、衛生・医療用品の基材、衣料、家庭用、産業用品基材、農業用資材等として、幅広い応用が可能なパルプ纖維と長纖維不織布との複合シートからなる生分解性不織布に関するものである。

【0002】

【従来の技術】熱可塑性樹脂からなる多数の長纖維を支持体上に積層し、次いで該積層シートに規則的かつ断続的な自己融着部を設けることによって得られる不織布は、一般的にスパンボンド不織布と呼ばれている。この不織布は、生産性が他の不織布より優れているばかりでなく、高いシート強度を有し広い範囲で使用されている。しかしながら、スパンボンド不織布は、シート形態を維持し、シート強度を付与する目的で、多数の自己融着部が設けられており、この自己融着部の存在によって、シート厚を大きくする目的で、シートの坪量を大きくすると柔軟性が失われ、結果的に硬いシートとなる。

【0003】また、スパンボンド不織布に使用される熱可塑性樹脂は一般的に疎水性であり、スパンボンド不織布の水の吸水力は無い。更に、スパンボンド不織布に使用される熱可塑性樹脂は、生分解性を有さないため、廃棄方法としては、一般に埋立や焼却処分が行われている。しかしながら、従来の熱可塑性合成高分子材料からなる長纖維不織布を埋立処理すると、不織布が微生物に分解されず、素材が化学的にも安定のために、長期間にわたって土中にそのまま残り、近年環境上の問題を引き起こすケースが増加している。

【0004】一方、焼却処理した場合には、燃焼時の発熱量が高いため、燃焼炉の寿命を短くするばかりでなく、ナイロン系の長纖維不織布の場合には、シアンガスのような有害ガスが発生する恐れもある。従ってこのような問題を解決する方法として、短期間の内に自然に分

解される新しい長纖維不織布が要望されている。

【0005】そこで、近年、長纖維不織布に用いる樹脂として生分解性を有する重合体の研究が多数行われている。この分解性を有する重合体としては、セルロース、キチンなどの多糖類、再生コラーゲンのような蛋白質、微生物によって作られるポリ-3-ヒドロキシブチレート、ポリ-3-ヒドロキシバリレート、ポリ-3-ヒドロキシカブレートのようなポリエステル等が知られている。

【0006】例えば、特開平4-57951号公報には、セルロース系の再生纖維または半合成纖維等をキトサン等で結合した不織布が開示されている。この不織布は、生分解性を有するが、現在広範な分野で大量に使用されており、生分解性を有さない、ポリプロピレン樹脂からなるスパンボンド不織布や、ポリエチレンテレフタレート樹脂からなるスパンボンド不織布のような長纖維不織布に比べ、生産性が劣るばかりでなく、強度や耐水性も劣っている。また、これらの中で、ポリ-3-ヒドロキシブチレート、ポリ-3-ヒドロキシバリレート、ポリ-3-ヒドロキシカブレート等は、熱可塑性を有するが、長纖維不織布の製造に必要な溶融紡糸性が乏しく、良好な長纖維不織布を得ることができない。

【0007】生分解性を有する長纖維不織布を得る方法としては、例えば特開平4-57953号公報に、ポリカプロラクトンを3~30%含むポリエチレンからなる纖維で構成されている生分解性不織布が開示されている。この場合、微生物による分解を受けるのは、ポリカプロラクトンの部分だけであり、樹脂の主成分であるポリエチレンは微生物による分解を全く受けず、化学的にも安定なため、埋立処理を行った場合には長期間土中に分解されずに残存してしまう。即ち、この不織布は生分解性ではなく生崩壊性不織布であって、この不織布の使用は、本質的な環境保護対策とはなり得ない。

【0008】一方、特開平5-214648号公報には、ポリ-ε-カプロラクトンおよび/またはポリ-β-カプロラクトンからなる長纖維不織布が開示されている。しかしながら、カプロラクトン単独での溶融紡糸による長纖維不織布の紡糸は、条件設定が難しく、得られた不織布の柔軟性は不十分である。また、ポリ-ε-カプロラクトンの融点が60°C前後で、ポリ-β-ポロビオラクトンの融点が100°C前後であり、熱安定性が不良であるので、実用材料に向かない問題点がある。

【0009】このように長纖維不織布の有する優れた柔軟性とシート強度の特徴を有し、且つ生分解性を有する長纖維不織布の出現が強く要望されている。これらの要望に応えて、生分解性を有する不織布が下記のように提案されている。

【0010】特開平7-48768号公報では溶融粘度を規定した脂肪族ポリエステル不織布が、さらに特開平7-34369号公報においてはポリエチレンサクシネ

ートとポリブチレンサクシネートからなる不織布が、さらにはまた、本発明者らが出願した、特開平8-60513号公報においてはグリコールと脂肪族ジカルボン酸またはその誘導体成分を構成単位として含むことを特徴とする脂肪族ポリエステル樹脂による長纖維不織布などが提案されている。

【0011】この不織布は前記問題をほぼ解決したが、しかしながら、前記の生分解性不織布は、スパンボンド不織布であるためにシートの嵩高性は限定されたものになると共に、シート厚を大きくする目的で、坪量を大きくすると柔軟性が失われ、結果的に硬いシートとなってしまうという欠点を依然として有している。その上グリコールと脂肪族ジカルボン酸またはその誘導体成分を構成単位として含む生分解性熱可塑性樹脂が、一般にスパンボンド不織布に使用される熱可塑性樹脂と比較して高価であることより、結果的にコストの高い生分解性不織布シートとなる。また、水の吸水力もコットン纖維やパルプ纖維と比較するとかなり低いものである。

【0012】本発明者らは、かかる現状に鑑み、上記欠点を解決しようとして種々研究を行った。この結果、前記生分解性スパンボンド不織布と木材パルプ纖維よりなる紙シートを積層した後、高圧水を用いて両者の纖維同士を交絡させて複合シートを製造するという公知の高圧水による交絡方法（特開平5-214654号公報、特開平5-253160号公報、特開平5-277053号公報、特開平5-285083号公報、特開平5-286100号公報、特開平6-17365号公報等）により得られる複合シートが生分解性を有し、嵩高で、優れた柔軟性と高吸水性を有することを見いだして提案した（特開平8-134763号公報）。

【0013】しかしながら、前記複合不織布シートは生分解性を有し、嵩高で、優れた柔軟性と高吸水性を有するが、樹脂の融点が115℃以下で、製造中の乾燥工程で高温にできないので、乾燥速度、ひいてはライン速度を速くする妨げになり、生産コストの上昇につながる。また、用途によっては、特に産業資材用では耐熱性が不十分という難点がある。

【0014】

【発明が解決しようとする課題】したがって、本発明の目的は、優れた柔軟性と耐熱性とシート強度を有し、しかも微生物により完全に分解される、嵩高で高吸水性を有する生分解性不織布シートを提供することにある。

【0015】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、かかる問題点を解決すべく鋭意研究を重ね、前記生分解性スパンボンド不織布と木材パルプ纖維よりなる紙シートを積層してなる複合不織布シートにおいて、グリコールと脂肪族ジカルボン酸またはその誘導体成分を構成単位として含むことを特徴とする脂肪族ポリエステル樹脂で構成する長纖維の表面に融点の高い生分解性熱可塑性樹脂で覆

うことにより着目し、即ち、芯鞘型複合長纖維にすることで、芯成分に柔軟性と紡糸性の優れるグリコールと脂肪族ジカルボン酸またはその誘導体成分を構成単位として含むことを特徴とする脂肪族ポリエステル樹脂であるポリブチレンサクシネート樹脂を用い、鞘成分に融点が高く耐熱性に優れるポリ乳酸樹脂を用いることによって、得られる複合不織布は、耐熱性、柔軟性、地合い、生分解性及び強度に優れることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0016】即ち、本発明は、熱可塑性を有する樹脂を溶融紡糸した長纖維が積層されてなる長纖維不織布の片面に、パルプ纖維よりなる紙シートを積層した後、該紙シート側から該長纖維不織布側に向て高圧水柱流を施すことにより、該パルプ纖維と該長纖維を結合させた複合シートからなる不織布において、該長纖維不織布が芯鞘複合長纖維により構成されて、該芯鞘複合長纖維の鞘成分が、L-乳酸単位またはD-乳酸単位を80モル%以上含有するポリ乳酸重合体からなり、芯成分が1,4-ブタンジオールとコハク酸から合成されるポリブチレンサクシネート重合体をウレタン結合により高分子量化した重合体からなることを特徴とする生分解性不織布である。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の芯樹脂として用いる脂肪族ポリエステル樹脂としては、グリコールと脂肪族ジカルボン酸またはその誘導体成分を構成単位として含むことを特徴とする脂肪族ポリエステル樹脂の中でも、溶融紡糸性の極めて優れるものを選択した。

【0018】即ち、1,4-ブタンジオールとコハク酸から合成されるポリブチレンサクシネート重合体にさらにイソシアネートを添加し、ポリブチレンサクシネート重合体の間をポリウレタン結合させたもので、数平均分子量が10,000以上で融点110~120℃の範囲にあり、且つ、JIS K 7210に記載された方法（190℃；2160g荷重）で測定したメルトフローレート（MFR）が10~70g/10分程度のものが好ましい。

【0019】つまり、MFRが1.0g/10分未満のポリブチレンサクシネートをウレタン結合させたものは溶融粘度が高すぎて得られる不織布が硬い風合いのものとなるので好ましくないことになる。逆にMFRが70g/10分を超えると、糸切れが発生しやすくなり、得られる複合長纖維不織布の風合いが低下するだけではなく、強度も低くなるので好ましくない。

【0020】なお、芯成分の上述したところの樹脂に、必要に応じて、例えば酸化防止剤、熱安定剤、紫外線吸収剤等の他、滑剤、ワックス類、着色剤、結晶化促進剤等の各種添加剤を本発明の効果を損なわない範囲内で添加することができる。

【0021】本発明において、鞘成分に使用されるポリ

乳酸重合体は、L-乳酸単位またはD-乳酸単位を80モル%以上含有するポリ乳酸重合体が好適である。乳酸モノマーは光学活性の炭素を有しており、そのため、ポリ乳酸には、光学異性体である、D体とL体とのあることが知られているが、両者を共重合すると融点は低下し、光学純度があまり低くなると融点が低すぎて、本発明の目的の一つである耐熱性が得られなくなる。輔成分に使用されるポリ乳酸重合体における乳酸単位の光学純度(L体またはD体の比率)は好ましくは80モル%以上、より好ましくは95モル%以上、更に好ましくは98モル%以上である。

【0022】一般には乳酸を発酵法で生産するとL体が生産されるので、工業的にはL-乳酸の方が大量且つ安価に入手し易く、本発明に係わるポリ乳酸重合体は通常L-乳酸を主体とするものである。しかしながら、D-乳酸を主体とする重合体であっても、L-乳酸の場合と同様の物性のものを得ることができる。複合長纖維の輔成分に使用されるポリ乳酸重合体の光学純度は80%未満になると、融点が低くなり、十分な耐熱性が得られず採用できない。

【0023】上述した本発明の輔樹脂として用いるポリ乳酸重合体も芯樹脂と同様に、JIS K 7210に記載された方法(200°C; 2160g荷重)で測定したメルトフローレート(MFR)が10~70g/10分程度のものが好ましい。つまり、MFRが10g/10分未満のポリ乳酸は溶融粘度が高すぎて得られる不織布が硬い風合いのものとなるので好ましくないことになる。逆にMFRが70g/10分を超えると、糸切れが発生しやすくなり、得られる複合長纖維不織布の風合いが低下するだけではなく、強度も低くなるので好ましくない。

【0024】更に、輔成分に用いられるポリ乳酸のMFRと芯成分に用いられるポリブチレンサクシネットをウレタン結合させたもののMFRとの差を0~30以内にすることが望ましい。この差が30を超えると、溶融伸長特性が違すぎるによって生ずる歪みで、紡糸性が悪くなる。

【0025】また、ポリ乳酸樹脂には、芯成分のポリブチレンサクシネットをウレタン結合させたものと同様に本発明においては、必要に応じて、例えば酸化防止剤、熱安定剤、紫外線吸収剤等の他、滑剤、ワックス類、着色剤、結晶化促進剤等の各種添加剤を本発明の効果を損なわない範囲内で添加することができる。

【0026】本発明における生分解性複合長纖維よりも不織布において、纖維軸に直交する纖維断面積に占める輔成分の重量比率は20%以上80%以下であることが望ましい。輔の重量比率が20%未満の場合は、耐熱性の効果が十分に發揮できず、また、輔の重量比率が80%を超える場合は、柔軟性と紡糸性が劣るので、好ましくない。

【0027】本発明に用いられる複合長纖維の繊度が10デニール以下であることが望ましい。長纖維の繊度が10デニールを超えると、纖維径が太くなりすぎ、得られる不織布が硬くなり風合いが低下するという不都合を生ずることがある。次に、複合長纖維の断面形状としては、円形断面の他に異形あるいは扁平とすることもできる。

【0028】本発明の複合長纖維は従来公知の複合纖維用の溶融纺丝装置を用いて得ることができる。口金から押し出され、エジェクターにより高圧エアーで延伸されて形成された多数の長纖維は、衝突板に当てて摩擦帶電させ、電荷による反発力で開纖させる。この場合、帯電方法として、コロナ放電処理を行うことも可能である。均一に開纖された多数の長纖維は、次いで支持体上に堆積される。

【0029】本発明においては、支持体上に集積された多数の長纖維は、規則的な間隔で纖維同士の自己融着区域を設けることによって熱接着される。この自己融着区域は、支持体上に集積した多数の長纖維を、加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、加熱および加圧処理を施すことにより、凹凸ロールの凸部に対応したシート部分が融着することによって形成される。この場合、ロールの温度は輔樹脂の融点より5°C~35°Cの範囲で低いことが好適である。ロール温度と樹脂の融点の差が5°C未満であると、ロールによる熱圧着処理時に纖維がロールに付着し、製造トラブルの原因となるため好ましくない。逆にロール温度と樹脂の融点の差が35°Cを越えると、自己融着部分の形成が不十分となり、シートの強度が著しく低下するばかりでなく、毛羽立ちが激しく好ましくない。凹凸ロールと平滑ロールで熱圧着処理を施す場合の圧力は、10~80kg/cm、好ましくは20~60kg/cmである。圧力が10kg/cm未満では、熱圧着処理による自己融着区域の形成が不十分となることがあり、80kg/cmを越えると、自己融着区域がフィルム状になり、不織布の風合いが損なわれることがある。

【0030】自己融着区域を形成する方法としては、集積された連続長纖維フィラメント群からなるウェブを、凹凸ロールと超音波ホーンの間に導入し、超音波処理を施すことにより、凸部に対応した点融着部分を形成することも可能である。

【0031】本発明においては、個々の自己融着区域の面積は、0.03~4mm²の範囲であることが好ましい。自己融着区域の面積が0.03mm²未満では、シート強度が不足するため好ましくない。逆に、自己融着面積が4mm²を超えると、シートが硬くなり好ましくない。自己融着区域の面積の総和は、長纖維不織布の全表面積の2~30%であることが好ましい。自己融着区域の面積の総和が2%未満では、不織布シート強度が不足するため好ましくない。逆に、自己融着面積が30%

を越えると、不織布シートが硬くなり好ましくない。

【0032】長纖維不織布シートの坪量は、5~100 g/m²、好ましくは、5~80 g/m²である。長纖維不織布シートの坪量が100 g/m²を超えて大きくなると、長纖維不織布シートの片面にパルプ纖維からなる紙シートを積層して、該紙シートから長纖維不織布シート側に向て高圧水柱流を施しても、高圧水柱流が長纖維不織布シートを通過しやすくなり、長纖維不織布シートを構成する長纖維と紙シートを構成するパルプ纖維との絡合が阻害される。

【0033】また、支持網の下に位置するサクションノズルから、長纖維不織布シートを通して、長纖維不織布シートと紙シートとの積層体表面の水を吸引除去する能力が低下するために、高圧水柱流を施した積層体表面に水溜まりが発生し、高圧水柱流のエネルギーが表面の水をはね飛ばすために使用されるため、エネルギーのロスが発生するばかりでなく、シートの地合も低下する。

【0034】逆に、長纖維不織布シートの坪量が5 g/m²未満になると、得られる生分解性不織布のシート強度が低い。更に、長纖維相互間の間隙が大きくなつて、高圧水柱流を施した時に、その間隙からパルプ纖維が流失し、無駄になる上、使用済みの排水を回収した場合、その中にパルプ纖維が大量に混入するので、その処理にも困るようになる。

【0035】前記のようにして準備した長纖維不織布シートの片面に、多数のパルプ纖維よりなる紙シートを積層する。この紙シートとしては、従来公知の種々の任意のものを使用することができる。紙シートの坪量も、任意に決定しうる事項であるが、特にJIS P 8124による方法で測定した坪量が10~200 g/m²である紙シートが好適に用いられる。紙シートの坪量が10 g/m²未満では、パルプ纖維の絶対量が少なくななり、得られる生分解性不織布シートの嵩高性が十分なものとならない。逆に、紙シートの坪量が200 g/m²を超えると、パルプ纖維の絶対量が多すぎて、紙シートに高圧水柱流を施しても、1本1本のパルプ纖維に長纖維不織布シートを構成する長纖維と絡合し得る程度の運動量を与える難くなるので適さない。更に、絡合後の生分解性不織布シートの柔軟性が低下する。

【0036】紙シートを構成するパルプ纖維としては、針葉樹及び広葉樹木材をクラフト法、サルファイト法、ソーダ法、ポリサルファイト法等で蒸解して、必要に応じて得られる未晒パルプ纖維或いは晒パルプ纖維、または前記針葉樹木材からのグランドパルプ纖維、サーモメカニカルパルプ纖維等の機械パルプ纖維を、単独で、または混合して使用することができる。針葉樹パルプ纖維と広葉樹パルプ纖維の重量配合比は、針葉樹パルプ纖維：広葉樹パルプ纖維=100:0~20:80、好ましくは100:0~40:60の範囲である。広葉樹パルプ纖維が全パルプ纖維の80%を超えると、高圧水柱

流を紙シートに施した際に、パルプの消失量が増加するばかりでなく、絡合後の生分解性不織布の柔軟性が低下する。

【0037】本発明に用いられる前記紙シートのJIS P 8118の方法による密度は、0.65 g/cm³以下である。紙シートの密度が0.65 g/cm³を超えると、紙シートの上から高圧水柱流を施した場合に、パルプ纖維の運動が抑制されるので、長纖維とパルプ纖維の絡合が不十分になり、絡合後のシートの柔軟性が低下する。しかしながら、紙シートの密度を小さくしようとしても限度があり、その下限はティッシュペーパーのように柔らかい状態の0.20 g/cm³程度である。

【0038】前記紙シートは、通常パルプ纖維を含有するスラリーを用いて公知の湿式抄紙機において抄紙して、ドライヤーで乾燥した後得られるが、抄紙の際、生分解性の損なわれない程度に、例えば、ポリアミド・エピクロルヒドリン樹脂或いはその変成物、ポリアミン・エピクロルヒドリン樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂等の湿潤紙力増強剤をスラリー中に添加しても良い。

【0039】以上のようにして得られた紙シートは、予め準備した長纖維不織布シートの片面に積層され、積層シートとされるが、この時にJIS P 8124の方法による長纖維不織布シートの坪量と紙シートの絶乾坪量比は、長纖維不織布：紙シート=1:1~1:19となるように調整する。長纖維不織布：紙シートが1:1を超える、即ち紙シートの比が1未満に減少すると、長纖維の量に対して、相対的にパルプ纖維の量が少なくななり、得られる生分解性不織布シートの嵩高性が低下する。また、長纖維に対して、廉価なパルプ纖維の量が少なくなることによって、得られる生分解性不織布自体の製造コストが高くなるので適さない。

【0040】逆に、長纖維不織布：紙シートが1:19未満、即ち紙シートの比が19を越えて増加すると、紙シートを構成するパルプ纖維の全てが強固に絡合し難くなり、その結果得られる生分解性不織布シートを湿潤させて使用した場合に、パルプ纖維が脱落しやすくなるので適さない。更に生分解性不織布シートの柔軟性が低下する。

【0041】長纖維不織布シートの片面に紙シートを積層した後、紙シートの表面から長纖維不織布シート側に向て高圧水柱流を施す際には、公知の水ジェットによる水交絡の方法がそのまま応用できる。即ち、前記のようにして得られた積層物の紙シート側から長纖維不織布シート側へ高圧水柱流が貫通するようにして、高圧水柱流を施すのである。

【0042】この高圧水柱流は、微細な孔径、例えば直径が0.01~0.3 mmのノズル孔を通して高い水圧、例えば、20~180 kg/cm³の圧力で水を噴出させて得られるものである。この高圧水柱流を前記積層物に施すと、高圧水柱流は、まず紙シートに衝突して

紙シートを長纖維不織布上に密着させ、次いでこの密着した状態で、紙シートの部分的な破壊が生じ、その部分の紙シートを構成するパルプ纖維を単離させ、パルプ纖維に曲げや捩れ等の変形を起こせると共に、パルプ纖維に運動エネルギーを十分に与え、ランダムな運動を生じさせる。その結果、これらの複合作用によって、パルプ纖維と長纖維不織布中の長纖維とが絡み合い、更に、このパルプ纖維によって長纖維同士も絡合することになるのである。

【0043】以上のようにして得られた積層シートからなる生分解性複合シートは、優れた柔軟性、耐熱性、強度および高吸水性を有するので、必要に応じて種々加工されて、衛生材料、医療用基材、衣料用基材、家庭用基材、産業用基材、農業用基材等に使用される。この複合シートは、堆肥中、湿った土中、活性汚泥を含む水中、海水中等で微生物により完全に分解可能であり、使用済みの前記各種材料は、形状を残すことなく消失してしまうので環境を汚染することもない。

【0044】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明は勿論これらに限定されるものではない。尚、以下の実施例において、部および%は、全て重量部および重量%である。

【0045】実施例1

芯成分としてメルトフローレート30、融点114℃のポリプロピレンサクシネットをウレタン結合させたものの樹脂（昭和高分子製、商品名：ビオノーレ）を準備し、鞘成分としてL-乳酸単位を95モル%を含有し、メルトフローレート20のポリ乳酸樹脂を準備した。次に芯鞘複合紡糸用口金を用いて、上記の樹脂を芯成分が50%、鞘成分が50%の比率で加熱して溶融し、多数の微細孔から押し出した後、エジェクターにより高速エアーで延伸して長纖維を形成し、移動するワイヤー上に堆積した。長纖維の纖度は1.7dであった。

【0046】次いで、この長纖維の堆積体を155℃に加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、凹凸ロールの凸部に対応する部分を融着することにより、目付10g/m²の長纖維不織布シートを得た。ロールの線圧は40kg/cmであり、得られた個々の自己融着区域の面積は1.0mm²であり、自己融着区域の面積の総和は15%であった。

【0047】この長纖維不織布の表面に、針葉樹晒クラフトパルプ纖維を用いて湿式抄紙して得られた紙シートを積層した。この紙シートは、JIS P 8124に示された方法で測定した坪量が35g/m²であり、密度は0.52g/cm³であった。次いで、積層シートを、その紙シート側が上に位置し、長纖維不織布側が下に位置するようにして、金網で形成された移送コンベア上に載置した。次いで、この積層物を20m/minの速度で移送させながら、孔径0.12mmのノズル孔が0.

64mm間隔で千鳥状に並んでいる高圧水柱流噴出装置を用いて、40kg/cm³の水圧で高圧水柱流を噴出させ、紙シートの表面に高圧水柱流処理を施してから、交絡、一体化済みの積層体をスルードライヤーを用い120℃で乾燥した。以上のようにして、紙シートを構成しているパルプ纖維と、長纖維不織布を構成している長纖維とが絡合して、両者が一体化された生分解性不織布シートを得た。

【0048】実施例2

芯成分としてメルトフローレート30、融点114℃のポリプロピレンサクシネットをウレタン結合させたものの樹脂（昭和高分子製、商品名：ビオノーレ）を準備し、鞘成分としてL-乳酸単位を95モル%を含有し、メルトフローレート20のポリ乳酸樹脂を準備した。次に芯鞘複合紡糸用口金を用いて、上記の樹脂を芯成分が50%、鞘成分が50%の比率で加熱して溶融し、多数の微細孔から押し出した後、エジェクターにより高速エアーで延伸して長纖維を形成し、移動するワイヤー上に堆積した。長纖維の纖度は1.7dであった。

【0049】次いで、この長纖維の堆積体を142℃に加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、凹凸ロールの凸部に対応する部分を融着することにより、目付30g/m²の長纖維不織布シートを得た。ロールの線圧は20kg/cmであり、得られた個々の自己融着区域の面積は1.0mm²であり、自己融着区域の面積の総和は15%であった。

【0050】この長纖維不織布の表面に、針葉樹晒クラフトパルプ纖維を用いて湿式抄紙して得られた紙シートを積層した。この紙シートは、JIS P 8124に示された方法で測定した坪量が80g/m²であり、密度は0.48g/cm³であった。次いで、紙シートが上に位置し、長纖維不織布が下に位置するようにして、金網で形成された移送コンベア上に載置した。次いで、この積層物を30m/minの速度で移送させながら、孔径0.15mmのノズル孔が1mm間隔で並んでいる高圧水柱流噴出装置を用いて、100kg/cm³の水圧で高圧水柱流を噴出させ、紙シートの表面に高圧水柱流処理を施してから、交絡、一体化済みの積層体をスルードライヤーで120℃で乾燥した。以上のようにして、紙シートを構成しているパルプ纖維と、長纖維不織布を構成している長纖維とが絡合して、両者が一体化された生分解性不織布シートを得た。

【0051】実施例3

芯成分としてメルトフローレート30、融点114℃のポリプロピレンサクシネットをウレタン結合させたものの樹脂（昭和高分子製、商品名：ビオノーレ）を準備し、鞘成分としてL-乳酸単位を85モル%を含有し、メルトフローレート20のポリ乳酸樹脂を準備した。次に芯鞘複合紡糸用口金を用いて、上記の樹脂を芯成分が30%、鞘成分が70%の比率で加熱して溶融し、多数の微

細孔から押し出した後、エジェクターにより高速エアーで延伸して長纖維を形成し、移動するワイヤー上に堆積した。長纖維の織度は4.4dであった。次いで、この長纖維の堆積体を125°Cに加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、凹凸ロールの凸部に対応する部分を融着することにより、目付20g/m²の長纖維不織布シートを得た。ロールの線圧は60kg/cmである。得られた個々の自己融着区域の面積は2.0mm²であり、自己融着区域の面積の総和は10%であったことと、紙シートの坪量が90g/m²であること以外、実施例2と同様にして生分解性不織布を得た。

【0052】比較例1

メルトフローレート30、融点114°Cのポリブチレンサクシネートをウレタン結合させたものの樹脂（昭和高分子製、商品名：ビオノーレ）を準備し、単成分で加熱して溶融し、多数の微細孔から押し出した後、エジェクターにより高速エアーで延伸して長纖維を形成し、移動するワイヤー上に堆積した。長纖維の織度は2.7dであった。

【0053】次いで、この長纖維の堆積体を95°Cに加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、凹凸ロールの凸部に対応する部分を融着することにより、目付10g/m²の長纖維不織布シートを得た。ロールの線圧は40kg/cmである。得られた個々の自己融着区域の面積は0.12mm²であり、自己融着区域の面積の総和は4%であった。

【0054】この長纖維不織布の表面に、針葉樹晒クラフトバルブ纖維を用いて湿式抄紙して得られた紙シートを積層した。この紙シートは、J I S P 8124に示された方法で測定した坪量が35g/m²であり、密度は0.52g/cm³であった。次いで、積層シートを、その紙シート側が上に位置し、長纖維不織布側が下に位置するようにして、金網で形成された移送コンベア上に載置した。次いで、この積層物を20m/分の速度で移送させながら、孔径0.12mmのノズル孔が0.

64mm間隔で千鳥状に並んでいる高圧水柱流噴出装置を用いて、40kg/cm²の水圧で高圧水柱流を噴出させ、紙シートの表面に高圧水柱流を施してから、交絡、一体化済みの積層体をスルードライヤーを用いて120°Cで乾燥したところ、長纖維不織布を構成している長纖維部分に融着が起こり、複合生分解性不織布シートが得られなかった。

【0055】比較例2

芯成分としてメルトフローレート30、融点114°Cのポリブチレンサクシネートをウレタン結合させたものの樹脂（昭和高分子製、商品名：ビオノーレ）を準備し、鞘成分としてL-乳酸単位を98モル%を含有し、メルトフローレート20のポリ乳酸樹脂を準備した。次に芯鞘複合紡糸用口金を用いて、上記の樹脂を芯成分が70%、鞘成分が30%の比率で加熱して溶融し、多数の微細孔から押し出した後、エジェクターにより高速エアーで延伸して長纖維を形成し、移動するワイヤー上に堆積した。長纖維の織度は2.1dであった。

【0056】次いで、この長纖維の堆積体を160°Cに加熱した凹凸ロールと平滑ロールの間に導入し、凹凸ロールの凸部に対応する部分を融着することにより、目付100g/m²の長纖維不織布シートを得た。ロールの線圧は40kg/cmである。得られた個々の自己融着区域の面積は0.28mm²であり、自己融着区域の面積の総和は8%であった。

【0057】比較例3

鞘成分としてL-乳酸単位を75モル%を含有し、メルトフローレート20のポリ乳酸樹脂を使用した以外は、実施例1と同様にして長纖維不織布シートを得たが、実施例1と同様に紙シートと交絡、一体化済みの積層体をスルードライヤーを用いて120°Cで乾燥したところ、長纖維不織布を構成している長纖維部分に融着が起こり、複合生分解性不織布シートが得られなかった。

【0058】

【表1】

	精融点(°C)	柔軟性	吸水性(秒)	生分解性	地合	紡糸性	不織布製造の可否
実施例1	175	5	0.8	○	5	5	○
	150	5	1.2	○	5	5	○
	140	4	1.0	○	4	4	○
比較例1	114	—	—	—	—	5	×
	175	2	測定不能	○	5	5	○
	120	—	—	—	—	5	×

【0059】試験方法

(1) 柔軟性

得られた生分解性不織布の柔軟性を、官能で評価した。

評価は以下の5段階で行った。

5…極めて柔軟である。

4…柔軟である。

3…柔軟性は普通である。

2…柔軟性がやや劣る。

1…シートが硬い。

【0060】(2) 吸水性

吸水性としてはJ I S L 1096の6.26.1滴下法に示された方法で測定した吸水速度にて評価した。吸水速度が15秒未満であれば優れていると判断した。

【0061】(3) 微生物分解性

不織布シートを、大きさ10cm×25cmにカットし、東京都江東区の野外（東京都江東区東雲1丁目10番6号、王子製紙株式会社、東雲研究センター内）に、土中25cmの深さに埋設し、6ヶ月後の不織布の形態変化を目視で評価した。評価は、以下の2段階で行った。

×…シートのパルプ繊維の分解は認められるが、長繊

5…糸切れはなく、紡糸性は極めて良好である。

4…糸切れは殆どなく、紡糸性は良好である。

3…糸切れは少しあるが、問題にならなく、紡糸性は普通である。

2…糸切れがかなりあり、紡糸性は悪い。

1…糸切れが非常に多く、紡糸性は極めて悪い。

【0064】(6) 不織布製造の可否：不織布製造の可

維不織布部分の分解は認められない。

○…シートのパルプ繊維および長繊維不織布いずれの部分とも分解が認められる。

【0062】(4) シート地合

得られた生分解性不織布の地合を、官能で評価した。評価は以下の5段階で行った。

5…地合が極めて良好である。

4…地合が良好である。

3…地合が普通である。

2…地合がやや悪い。

1…地合が極めて悪い。

【0063】(5) 紡糸性：樹脂の紡糸性を、溶融紡糸時の糸切れの多少で評価した。評価は以下の5段階で行った。

否を、以下の3段で評価した。

×…不織布の製造は不可能である。

△…不織布の製造は難しく、良好なシートは得られない。

○…不織布の製造は容易であり、良好なシートが得られる。

【0065】表1から明らかなように、本発明の不織布シートは、耐熱性、柔軟性、吸水性、地合及び微生物分解性にきわめて優れている（実施例1～3）が、これに対して、長繊維不織布が単成分のポリプロピレンサクシート樹脂からの長繊維で構成されていると、融点が低いため、耐熱性が不十分で、乾燥過程での融着発生によって製造不可能であったので、本発明の目的には適さない（比較例1）。また、紙シートとの複合を行わない、長繊維不織布では吸水性がないので適さない（比較例

2）。一方、複合長繊維の鞘成分に使用されるポリ乳酸重合体の光学純度は80%以下になると、融点が低くなり、十分な耐熱性が得られず、製造不可能であった（比較例3）。

【0066】

【発明の効果】以上詳細に説明したように、本発明は、耐熱性、柔軟性、吸水性および地合に極めて優れ、且つ微生物により容易に分解される性質を備えた生分解性不織布シートを提供するという効果を奏する。